

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT (Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 20 OCT 2004

WIPO

PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 202ku06.wo	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/06051	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 10.06.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 13.06.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01D53/86		
Anmelder UHDE GmbH et Al.		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 6 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

- ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 4 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  08.12.2003	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  18.10.2004
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt - Gitschiner Str. 103 D-10958 Berlin Tel. +49 30 25901 - 0 Fax: +49 30 25901 - 840	Bevollmächtigter Bediensteter  Gruber, M  Tel. +49 30 25901-336 

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-17 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-21 eingegangen am 03.09.2004 mit Schreiben vom 01.09.2004

**Zeichnungen, Blätter**

1/6-6/6 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/06051

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

## **V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

### 1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche 1-21
	Nein: Ansprüche
Erfinderische Tätigkeit (IS)	Ja: Ansprüche 15-21
	Nein: Ansprüche 1-14
Gewerbliche Anwendbarkeit (IA)	Ja: Ansprüche: 1-21
	Nein: Ansprüche:

### 2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf das folgende Dokument verwiesen:

D1: WO 01/51181 A (SCHWEFER MEINHARD ;SZONN ERICH (DE); KRUPP  
UHDE GMBH (DE); TUREK T) 19. Juli 2001 (2001-07-19)

**1** Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT, weil der Gegenstand der Ansprüche 1 bis 14 nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit im Sinne von Artikel 33(2) PCT beruht.

**1.1** Dokument **D1** offenbart ein Verfahren (siehe Ansprüche und Seite 7, Zeilen 22 bis 34) zur Minderung des Gehalts an  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Prozessgasen, bei dem

- a) das zu behandelnde Gas über eine Folge zweier Katalysatorzonen I und II (kann als zwei aneinander grenzende Katalysatorbetten verstanden werden) geleitet wird, die einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe aufweisen (z.B. Fe-ZSM-5),
- b) die Zugabe von Ammoniak zwischen den Reaktionszonen erfolgt,
- c) die Temperatur in beiden Zonen auf einen Wert  $< 500^\circ\text{C}$  eingestellt wird,
- d) der Gasdruck zwischen 1 und 25 bar eingestellt wird und
- e) eine Raumgeschwindigkeit zwischen  $5.000$  und  $100.000 \text{ h}^{-1}$  gewählt wird (im Ausführungsbeispiel:  $10.000 \text{ h}^{-1}$ ).

Der Gegenstand des Anspruchs 1 unterscheidet sich von der Offenbarung in D1 dadurch, dass das die erste Katalysatorstufe verlassende Gas einen Gehalt an  $\text{N}_2\text{O}$  von mindestens 200 ppm aufweist. In D1 liegt dieser Wert bei maximal 200 ppm.

Die "deutlich gesteigerte Effektivität" des Verfahrens, die aus diesem technischen Unterschied resultieren soll, bleibt jedoch unklar (keine Beispiele oder Gegenbeispiele, um die Verbesserung gegenüber D1 zu demonstrieren). Auch wird in Anspruch 1 nicht erwähnt, unter welchen (sich von denen in D1 unterscheidenden) Reaktionsbedingungen eine simultane  $\text{NO}_x$ -Reduktion und

N<sub>2</sub>O-Zersetzung in der zweiten Reaktionsstufe erfolgt (z.B. erhöhter Druck: >2 bar; siehe Seite 4, Zeilen 1,2 der Beschreibung).

Erfinderische Tätigkeit im Sinne des Artikels 33(3) kann dem Gegenstand des Anspruchs 1 nicht zuerkannt werden.

**1.2** Derzeitig ist nicht ersichtlich, inwiefern die Ansprüche 2 bis 14 Merkmale enthalten, die in Kombination mit den Merkmalen irgendeines Anspruchs, auf den sie sich beziehen, die Erfordernisse des PCT in Bezug auf erfinderische Tätigkeit erfüllen.

**2** Der Gegenstand der Ansprüche 15 bis 21 erfüllt die Erfordernisse des Artikels 33(1) PCT.

**2.1** D1 offenbart eine Vorrichtung zur Durchführung zur Minderung des Gehalts von NO<sub>x</sub> und N<sub>2</sub>O in Gasen, die zwei Katalysatorzonen I und II (kann als zwei aneinander grenzende Katalysatorbetten verstanden werden) und eine zwischen den Zonen angeordnete Vorrichtung zur Einbringung eines gasförmigen Reduktionsmittels in den Strom des zu behandelnden Gases umfasst.

Der Gegenstand des Anspruchs 15 **unterscheidet** sich von der Vorrichtung in D1 dadurch, dass mindestens eines der Katalysatorbetten in der Form eines Hohlzylinders ausgestaltet ist, der von dem NO<sub>x</sub> und N<sub>2</sub>O enthaltenden Gas radial durchströmt wird.

**2.2** Die Form eines Hohlzylinders von mindestens einem der Katalysatorbetten in Kombination mit der radialen Gasführung führt zu einem deutlich vermindertem Druckverlust und somit zu einer einfacheren Steuerung des Verfahrens.

**2.3** Die Ansprüche 16 bis 21 sind von Anspruch 15 abhängig und erfüllen auch die Erfordernisse des Artikels 33 PCT.

**3** Beide unabhängigen Ansprüche (Verfahren und Vorrichtung) sind ohne Bezug zueinander formuliert. Das Verfahren nach Anspruch 1 kann offenbar mit vergleichbarer Wirkung in jeder geeigneten Vorrichtung mit zwei Katalysatorbetten (z.B. D1), durchgeführt werden, egal welche geometrische Form die

Katalysatorbetten aufweisen. Aus den Ansprüchen geht nicht hervor, warum zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1 vorteilhaft die Vorrichtung nach Anspruch 15 verwendet werden soll.

Ferner ist nicht ersichtlich, dass die Unterscheidungsmerkmale der unabhängigen Ansprüche zum Stand der Technik (D1) identisch sind, und die zu lösende Aufgabe beider Ansprüche dieselbe ist.

Die beiden Ansprüche 1 und 15 verstossen deshalb in ihrer derzeitigen Fassung formal gegen Regel 13.1 PCT, d.h. sie erfüllen (formal) nicht das Erfordernis der Einheitlichkeit der Erfindung.

Abhilfe kann durch einen expliten Bezug auf die Vorrichtung nach Anspruch 15 im auf das Verfahren gerichteten Anspruch geschaffen werden.

## Patentansprüche:

202ku06.wo

1. Verfahren zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen,  
5 insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend die Massnahmen:
- a) Leiten des  $\text{N}_2\text{O}$  und  $\text{NO}_x$  enthaltenden Gases über eine Folge zweier  
Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene  
Zeolithe,  
10 b) Zugabe eines Reduktionsmittels für  $\text{NO}_x$  zwischen den Katalysatorbetten,  
c) Einstellen einer Temperatur von weniger als  $500^\circ\text{C}$  im ersten  
Katalysatorbett und zweiten Katalysatorbett,  
d) Einstellen eines Gasdruckes von mindestens 2 bar in den beiden  
Katalysatorbetten,  
15 e) Auswahl einer solchen Raumgeschwindigkeit im ersten und zweiten  
Katalysatorbett, so dass im ersten Katalysatorbett ein Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -  
Gehalts des Gases um höchstens 90%, bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$  Gehalt am  
Eingang des ersten Katalysatorbettes, erfolgt und sich ein  $\text{N}_2\text{O}$  Gehalt von  
größer als 200 ppm einstellt und dass im zweiten Katalysatorbett ein  
20 weiterer Abbau des  $\text{N}_2\text{O}$ -Gehalts des Gases um mindestens 30%,  
bezogen auf den  $\text{N}_2\text{O}$  Gehalt am Eingang des zweiten Katalysatorbettes,  
erfolgt.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass im ersten und  
25 zweiten Katalysatorbett der gleiche Katalysator verwendet wird.
3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der oder die mit  
Eisen beladenen Zeolithe vom Typ MFI, BEA, FER, MOR, FAU und/oder  
MEL sind.  
30
4. Verfahren nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, dass der mit Eisen  
beladene Zeolith vom Typ MFI ist.

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass der Zeolith ein Fe-ZSM-5 ist.
- 5 6. Verfahren nach Anspruche 1, dadurch gekennzeichnet, dass das Verfahren bei einem Druck im Bereich von 4 bis 25 bar durchgeführt wird.
7. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Reduktionsmittel für  $\text{NO}_x$  Ammoniak verwendet wird, das in einer Menge von 1,0 bis 1,2 molaren Anteilen, bezogen auf einen molaren Anteil an abzubauenem  $\text{NO}_x$ , eingesetzt wird.  
10
8. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass das  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltende Gas mit einer Raumgeschwindigkeit von 5.000 bis 50.000  $\text{h}^{-1}$ , bezogen auf das addierte Katalysatorvolumen beider Katalysatorbetten über diese geleitet wird.  
15
9. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Temperatur in der ersten und in der zweiten Reaktionszone zwischen 350 bis 450°C liegt.
- 20 10. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass in mindestens einem Katalysatorbett mit Eisen beladene Zeolithe eingesetzt werden, die mit Wasserdampf behandelt worden sind.
11. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass als Katalysatoren in mindestens einem Katalysatorbett mit Eisen beladene Zeolithe eingesetzt werden, bei denen das Verhältnis von Extra-Gitter-Aluminium zu Gitter-Aluminium mindestens 0,5 beträgt.  
25
12. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß der Salpetersäureproduktion integriert ist.  
30
13. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß des Betriebes einer Gasturbine integriert ist.



14. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass dieses in den Prozeß des Betriebes eines Kraftwerks integriert ist.
- 5 15. Vorrichtung zur Minderung des Gehalts von  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  in Gasen, insbesondere in Prozessgasen und Abgasen, umfassend:
- 10 A) zwei hintereinander geschaltete Katalysatorbetten enthaltend einen oder mehrere mit Eisen beladene Zeolithe, welche von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas durchströmt werden,
- 15 B) eine zwischen den Katalysatorbetten angeordnete Vorrichtung zur Einbringung eines gasförmigen Reduktionsmittels in den Strom des  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gases, umfassend einen Mischer, durch den das Gas nach Durchströmung des ersten Katalysatorbettes geleitet wird, und umfassend eine Zuleitung für Reduktionsmittel, die in den Raum hinter dem ersten Katalysatorbett und vor oder in den Mischer mündet, wobei das zu reinigende Gas nach Verlassen des Mixers durch das zweite Katalysatorbett geleitet wird und wobei
- 20 C) mindestens eines der Katalysatorbetten in der Form eines Hohlzylinders ausgestaltet ist, der von dem  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas radial durchströmt wird.
16. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass beide Katalysatorbetten in einem Behälter angeordnet sind.
- 25 17. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass beide Katalysatorbetten vom  $\text{NO}_x$  und  $\text{N}_2\text{O}$  enthaltenden Gas radial durchströmt werden.
- 30 18. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass zwei radial durchströmte Katalysatorbetten übereinander angeordnet sind oder dass eine Kombination von übereinander angeordneten axial und radial durchströmten Katalysatorbetten vorliegt, wobei durch geeignet angebrachte Trennflächen

zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.

- 5 19. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass zwei radial durchströmte Katalysatorbetten mit verschiedenen Abmessungen vorliegen, wobei das Außenmaß des einen Katalysatorbettes kleiner ist als das Innenmaß des anderen Katalysatorbettes und beide Katalysatorbetten konzentrisch zueinander angeordnet sind, und wobei durch geeignet
- 10 angebrachte Trennflächen zwischen den Katalysatorbetten der Weg des Gases so vorgegeben wird, dass zunächst das erste und sodann das zweite Katalysatorbett durchströmt wird.
- 15 20. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass das Gas nach Durchströmung des ersten Katalysatorbettes in einen im Zentrum der Vorrichtung angeordneten Mischer geleitet wird.
- 20 21. Vorrichtung nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, dass der Mischer als statischer Mischer oder als dynamischer Mischer ausgestaltet ist, vorzugsweise in Form eines durchströmten Rohres.